

## PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 08-027420

(43)Date of publication of application : 30.01.1996

(51)Int.Cl.

C09D183/02

C09D183/04

H01B 3/46

(21)Application number : 06-161559

(71)Applicant : SUMITOMO CHEM CO LTD

(22)Date of filing : 13.07.1994

(72)Inventor : TAGUCHI SATOSHI  
NAKADA TAKASHI

## (54) COATING LIQUID FOR FORMING SILICA-BASED INSULATING FILM

## (57)Abstract:

PURPOSE: To obtain a coating liquid for forming a silica-based insulating film, good in flatness degree even in a narrow pattern and excellent in stability with time.

CONSTITUTION: This coating liquid for forming a silica-based insulating film comprises a siloxane-based prepolymer obtained by hydrolyzing and condensing at least two selected from among organosilicon compounds represented by the formula  $R_1Si(OR_2)_n$  [ $R_1$  and  $R_2$  denote independently each a 1-6C alkyl group or a 6-10C aryl group; (n) denotes an integer of 2-4] [except two or more selected from among  $Si(OR_2)_4$  and  $R_{12}(OR_2)_2$ ] and an organic solvent. In the coating liquid, the weight-average molecular weight of the prepolymer is 1000 to  $\leq 4000$  and the electric conductivity of the coating liquid is 0.1-100 $\mu$ S/cm.

## LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

15.12.1997

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

3287119

[Date of registration]

15.03.2002

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

Copyright (C); 1998,2003 Japan Patent Office

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 特 許 公 報 (B 2)

(11) 特許番号

特許第3287119号

(P3287119)

(45) 発行日 平成14年5月27日(2002.5.27)

(24) 登録日 平成14年3月15日(2002.3.15)

(51) Int.Cl.<sup>7</sup>

識別記号

F I

C 0 9 D 183/02

C 0 9 D 183/02

183/04

183/04

H 0 1 B 3/46

H 0 1 B 3/46

E

請求項の数1(全 7 頁)

(21) 出願番号 特願平6-161559

(22) 出願日 平成6年7月13日(1994.7.13)

(65) 公開番号 特開平8-27420

(43) 公開日 平成8年1月30日(1996.1.30)

審査請求日 平成9年12月15日(1997.12.15)

(73) 特許権者 000002093

住友化学工業株式会社

大阪府大阪市中央区北浜4丁目5番33号

(72) 発明者 田口 敏

千葉県市原市姉崎海岸5の1 住友化学  
工業株式会社内

(72) 発明者 中田 孝

千葉県市原市姉崎海岸5の1 住友化学  
工業株式会社内

(74) 代理人 100093285

弁理士 久保山 隆 (外1名)

審査官 原 健司

(56) 参考文献 特開 平4-55476 (J P, A)

特開 昭63-278977 (J P, A)

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 シリカ系絶縁膜形成用塗布液

1

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項1】 一般式 $R^1 \dots Si(OR^2)_n$  (式中、 $R^1$  及び $R^2$  は、独立に、炭素数1~6個を有するアルキル基又は炭素数6~10個を有するアリール基を表し、 $n$  は2~4の整数を表す。) で表わされる有機シリコン化合物の中から選ばれた少なくとも2種(ただし、 $Si(OR^2)_4$ 、及び $R^1$ 、 $Si(OR^2)_4$ 、のみから選ばれた二種以上を除く。) を加水分解縮合して得られるシロキサン系プレポリマーと有機溶媒とから成るシリカ系絶縁膜形成用塗布液において、該プレポリマーの重量平均分子量が2000~4000であり、かつ該塗布液の導電率が0.1~100  $\mu s/cm$ であることを特徴とするシリカ系絶縁膜形成用塗布液。

【発明の詳細な説明】

【0001】

2

【産業上の利用分野】 本発明は、半導体基板、金属板、ガラス板、セラミックス板などの基板上にシリカ系絶縁膜を形成するための塗布液に関する。更に詳しくは、本発明は、多層配線を形成する際、微細パターンの形成された下層配線の段差を平坦化することができるシリカ系絶縁膜形成用塗布液に関する。

【0002】

【従来の技術】 近年、超LSIの高集積化に伴ない、多層配線技術に関する要求がますます高度なものとなってきた。すなわち、パターン間の溝は狭くなり、かつ素子表面の凹凸が大きくなっており、多層配線を行う場合に、下部配線(及び絶縁膜など)で形成された素子表面凹凸が大きいと上部配線パターンの正確な形成が妨げられる。このため素子表面の凹凸をなくす平坦化処理が必須となってきた。このような観点から、近年平坦性の優

10

れた塗布膜法が見直されてきている。

【0003】塗布膜として現在迄に提案されているものは多い。有機系で代表的なものはポリイミドやポリイミドシリコンなどであるが、これらは平坦性、耐クラック性には優れているものの、耐熱性、ポリシリコン、Al、SiO<sub>2</sub>、Si、N、などの基材（以下「サブストレート」ということもある。）との密着性に劣っており、また長期間における劣化の問題がある。特に、450℃以上の温度で一部分解が起るのが大きな欠点である。

【0004】これに対して、テトラエトキシシランの縮重合物であるシリカガラス系の塗布膜は、耐熱性、サブストレートとの密着性に優れているが、耐クラック性に劣り、ある程度の素子表面凹凸の緩和には効果があるものの、近年の高集積度の超LSIのような狭いパターン巾や高アスペクト比の溝を上部配線パターン形成に支障がない程度に平坦化することはできない。

【0005】一方、ポリラダーオルガノシロキサンやポリラダーオルガノシロキサンとシリカガラスなどとの複合物の提案もあるが、サブストレートとの密着性や耐クラック性、膜の均一性に劣り、実用的ではない（特開昭57-83563号公報、特開昭57-131250号公報、特開昭56-129261号公報参照。）。

【0006】

【発明が解決しようとする課題】かかる現状において、本発明者が解決すべき課題は、パターンの形状によらず、下層配線の段差を平坦化できる絶縁膜を形成できるポリシロキサン系塗布液を提供することにある。

【0007】

【課題を解決するための手段】塗布膜法の基本は、膜を形成するベースポリマーを有機溶剤に溶解させ、浸漬又はスピンコート法などにより基材に塗布し、加熱により有機溶剤の除去と熱縮重合を行い、ガラス質又は巨大高分子の膜を形成させることからなる。

【0008】本発明者らは、各種有機シリコン化合物の縮合反応により得られるブレポリマーと有機溶媒とからなるシリカ系絶縁被膜形成用塗布液に関して鋭意検討の結果、特定の有機シリコン化合物を用いたブレポリマーである分子量範囲のものと有機溶媒からなる塗布液で、かつ該塗布液の導電率を調整することにより、凹凸の大きな素子表面に塗布した場合、平坦性、耐クラック性が優れ、かつ保存安定性の良好な塗布液となることを見出し、本発明に至った。

【0009】すなわち、本発明は、一般式  $R^1 \text{---} Si(OR^2)_n$ 。 (式中、 $R^1$  及び  $R^2$  は、独立に、炭素数1～6個を有するアルキル基又は炭素数6～10個を有するアリール基を表し、 $n$ は2～4の整数を表す。) で表わされる有機シリコン化合物の中から選ばれた少なくとも2種（ただし、 $Si(OR^2)_n$ 、及び  $R^1$ 、 $Si(OR^2)_n$ 、のみから選ばれた二種以上を除

く。)を加水分解縮合して得られるシロキサン系ブレポリマーと有機溶媒とから成るシリカ系絶縁膜形成用塗布液において、該ブレポリマーの重量平均分子量が1000～4000以下であり、かつ該塗布液の導電率が0.1～100  $\mu s/cm$ であることを特徴とするシリカ系絶縁膜形成用塗布液に係るものである。

【0010】本発明に用いられる有機シリコン化合物としては、一般式  $R^1 \text{---} Si(OR^2)_n$ 。 (式中、 $R^1$  及び  $R^2$  は、独立に、炭素数1～6個を有するアルキル基又は炭素数6～10個を有するアリール基を表し、 $n$ は2～4の整数を表す。) で表されるものが用いられる。

【0011】このうち  $n=4$ 、すなわち4官能性の有機シリコン化合物の具体例としては、テトラメトキシシラン、テトラエトキシシラン、テトライソプロポキシシラン、テトラフェノキシシランなどがあげられる。特にテトラメトキシシラン、テトラエトキシシランが好適に使用される。

【0012】次に  $n=3$ 、すなわち3官能性の有機シリコン化合物の具体例としては、メチルトリメトキシシラン、メチルトリエトキシシラン、メチルトリイソプロポキシシラン、メチルトリフェノキシシラン、エチルトリメトキシシラン、エチルトリエトキシシラン、エチルトリイソプロポキシシラン、エチルトリフェノキシシラン、フェニルトリメトキシシラン、フェニルトリエトキシシラン、フェニルトリイソプロポキシシラン、フェニルトリフェノキシシランなどがあげられる。好ましくはメチルトリメトキシシラン、メチルトリフェノキシシラン、メチルトリエトキシシランである。

【0013】次に  $n=2$ 、すなわち2官能性の有機シリコン化合物の具体例としては、ジメチルジメトキシシラン、ジメチルジエトキシシラン、ジメチルジイソプロポキシシラン、ジメチルジフェノキシシラン、ジエチルジメトキシシラン、ジエチルジエトキシシラン、ジエチルジイソプロポキシシラン、ジエチルジフェノキシシラン、ジイソプロピルジメトキシシラン、ジイソプロピルジエトキシシラン、ジイソプロピルジイソプロポキシシラン、ジイソプロピルジフェノキシシラン、ジフェニルジメトキシシラン、ジフェニルジエトキシシラン、ジフェニルジイソプロポキシシラン、ジフェニルジフェノキシシランなどがあげられる。特にジメチルジメトキシシラン、ジメチルジエトキシシラン、ジフェニルジエトキシシランが好適に用いられる。

【0014】これらの有機シリコン化合物は少なくとも2種以上（ただし、 $Si(OR^2)_n$ 、及び  $R^1$ 、 $Si(OR^2)_n$ 、のみから選ばれた二種以上を除く。）を加水分解縮合させる。 $Si(OR^2)_n$ 、のみから選ばれた2種以上からなるブレポリマーで塗布液を作成すると、素子表面上に塗布したのち加熱して形成される絶縁膜は、先に述べたテトラエトキシシランの縮重合物と同様

のシリカガラス膜となり、耐クラック性に劣るため、高集積度の超LSIでの平坦化には用いることができない。

【0015】一方、3官能性や2官能性の有機シリコン化合物を含めることで最終的な絶縁膜中にアルキル基やアリール基が残存し、加熱時や冷却時に膜内に発生する応力が緩和され、耐クラック性に優れた塗布液となるものと思われる。ただし、2官能性の有機シリコン化合物のみでは化合物により液状であったり、基板との密着性に劣るなど問題があり、2官能性の有機シリコン化合物を用いるときは、4官能性及び／又は3官能性の有機シリコン化合物と組合せて用いる。

【0016】使用する用途に応じ、絶縁膜としての膜質や基板となる材質との密着性などを考慮して有機シリコン化合物を選択すればよい。

【0017】特に超LSI用として用いる場合には、

(a) 4官能性有機シリコン化合物、(b) 3官能性有機シリコン化合物、(c) 2官能性有機シリコン化合物をモル分率で(a):(b):(c)=0.05~0.8:0.03~0.8:0~0.7がシリコン基板、シリコン酸化膜及び配線材料などとの密着性や形成された絶縁膜の膜質から好ましく、(a):(b):(c)=0.1~0.6:0.1~0.5:0.05~0.5がより好ましい。

【0018】上記有機シリコン化合物を加水分解縮合せしめて得られるシロキサン系プレポリマーの重量平均分子量は(GPC法、ポリスチレン換算)微細なパターンへの埋め込み性に優れ、素子表面の凹凸の平坦化を行うには、1000~4000が好適であり、好ましくは2000~3000である。

【0019】次に本発明の低分子量シロキサン系プレポリマーを得る製造法について記述する。

【0020】アルコキシシランの加水分解重縮合反応は、一般的には酸触媒又はアルカリ触媒の存在下で行われる。勿論、無触媒下でも実施された例はみられる。いずれの方法でも低分子量のプレポリマーを得ることはできる。短時間で収率よく本発明のプレポリマーを得るには、塩酸、硝酸、酢酸などの酸触媒が望ましい。

【0021】反応温度は150℃以下で、好ましくは0℃~50℃である。

【0022】反応方法は、前記有機シリコン化合物から選ばれた少なくとも2種(4官能性及び2官能性のもののみから選ばれた2種以上を除く。)を混合し、水を滴下して共重縮合させる方法が一般的である。溶剤は特に必要としないが、溶剤としてメタノール、エタノール、イソプロパノールなどのアルコール類、酢酸メチル、酢酸エチル、酢酸ブチルなどのエステル類、メチルエチルケトン、メチルイソブチルケトンなどのケトン類、ベンゼン、トルエンなどの芳香族類を用いることができる。これらは、そのまま塗布液の溶剤の一部になる。

【0023】触媒は先に投入してもよく、水と一緒に滴下してもよい。

【0024】水の量は理論量(アルコキシ基又はアリールオキシ基2ケに対し、水1モル)の0.8~1.5倍量が好ましく、多すぎるとゲル化により一部有機溶剤不溶物を形成するし、又、少なすぎると未縮合基としてのアルコキシ基又はアリールオキシ基が多く残り好ましくない。

【0025】かかる重合は回分式でも連続式でもよい。

【0026】本発明の好適な分子量を安定的に得る方法は、分子量の変化をGPCで追跡しながら目的の分子量より少し低めで反応を中断する。反応を中断する方法は、溶剤で稀釈すると共に触媒を除去する。溶剤による稀釈は単に反応速度を遅くする目的であり、温度を0℃以下にすることによっても目的は達せられる。

【0027】触媒の除去方法は、中和反応、吸着除去、イオン交換処理など種々の方法がとられるが、半導体用途に使用する場合には純度を厳しく求められることから、イオン交換樹脂による除去が望ましい。

【0028】特にNaやK、Alといった混入してきた不純物金属も同時に除去するためにアニオン交換樹脂とカチオン交換樹脂との混床でイオン交換処理するのが好ましい。

【0029】次に、絶縁膜形成用塗布液について説明する。

【0030】上記シロキサン系プレポリマーはメタノール、エタノール、イソプロパノールなどのアルコール系溶剤、酢酸メチル、酢酸エチル、酢酸ブチルなどのエステル系溶剤、アセトン、メチルエチルケトン、メチルイソブチルケトンなどのケトン系溶剤、ブチルセルソルブなどのエチレングリコールのモノアルキルエーテル系溶剤、1-メトキシ-2-プロパノールなどのプロピレングリコールのモノアルキルエーテル系溶剤、ベンゼン、トルエンなどの芳香族系溶剤などの有機溶剤に所望する膜厚が得られるように溶解して使用される。

【0031】かかるシロキサン系プレポリマーと有機溶剤の混合物において、該シロキサン系ポリマーの濃度は使用状況に応じ適宜決定されるが、一般的には4重量%以上であり、10以上、20以下が好適に用いられる。

20重量%以上になると塗布した膜にストリエーションが発生しやすい。

【0032】次に、上記絶縁膜形成用塗布液の経時安定性について述べる。上記の方法で作成された塗布液はそのままでは、冷却保存していても数日~1ヶ月のうちに塗布液の性質が変化し、作成当時は超LSIの素子表面の凹凸を平坦化し、微細パターン埋込みが優れていたものも、保存したのちに測定すると平坦性や埋込性が劣ってくるのが判明した。種々の検討の結果、経時安定性は塗布液の導電率と関係があることがわかった。

【0033】すなわち、塗布液の導電率が0.1~10

0  $\mu\text{s}/\text{cm}$  の範囲では数ヶ月保存後でも充分な平坦性及び埋込性をもったものであったが、導電率が0.1  $\mu\text{s}/\text{cm}$  以下及び100  $\mu\text{s}/\text{cm}$  以上では保存後の塗布液は優れた平坦性及び埋込性を示さなかった。すなわち、塗布液の導電率は0.1~100  $\mu\text{s}/\text{cm}$  に管理することが必要であり、0.2~30  $\mu\text{s}/\text{cm}$  がより好ましい。

【0034】塗布液の導電率を管理する方法としては、反応に用いる酸触媒の量を反応前に塗布液の導電率が0.1~100  $\mu\text{s}/\text{cm}$  となるように制御する方法がある。又、別の方法としては触媒を除去後、塗布液に溶解する酸や塩を添加する方法がある。添加方法としては酸や塩を塗布液の有機溶媒成分に溶解し、塗布液の導電率を測定しながら添加すれば制御がしやすく好ましい。

【0035】導電率を調整するために添加する酸や塩としては、塗布液に用いられる有機溶媒又は、反応で生成するアルコール類に溶解し、溶解した状態で部分的でもよいが解離し、塗布液の導電率を0.1~100  $\mu\text{s}/\text{cm}$  に保てるものであればよい。そのようなものとして塩酸や塩化物質、酢酸や酢酸塩類、硝酸や硝酸塩類、リン酸や一部のリン酸塩類、塩素酸や塩素酸塩類、過塩素酸や過塩素酸塩類、臭化水素酸や臭化物質、ヨウ化水素酸やヨウ化物質、一部の炭酸水素塩類などをあげることができる。

【0036】特に、本発明の塗布液を超LSI用途に用いる場合には、ハロゲン類や金属類の低減を求められることがあるので、それらを含まない酸、又は塩を添加するのが好ましい。そのようなものとして酢酸、酢酸アンモニウム、酢酸テトラメチルアンモニウム、酢酸トリエチルアンモニウム、炭酸水素テトラメチルアンモニウム、硝酸及び硝酸アンモニウムをあげることができる。

【0037】最後に絶縁膜の形成方法について説明する。

【0038】絶縁膜形成は、先ず上記絶縁膜形成塗布液を一般に使用されるスピンコート法又は浸漬法により塗布し、次いで風乾又は低温加熱により溶剤を充分除去した後、400℃以上の温度に加熱して、未反応のアルコキシ基を分解させ、この部分でシロキサン結合を形成させることにより行われる。

【0039】この膜形成に於て、熱処理は熱処理温度にも依存するが10分間以上、好ましくは30分間以上行われる。

【0040】

【実施例】以下本発明を実施例により具体的に説明する。物性値の測定は次の如く行った。

【0041】(1) 重量平均分子量の測定

GPC (ゲルパーミエーションクロマトグラフィー) 法により測定した値を、昭和電工 (株) のShodex Standard S シリーズのSL-105を用いたポリスチレン (標準球) 換算値で表した。GPC法の

測定は、装置として日本分光社のTRIROTAR-II I を使用し、カラムとして昭和電工 (株) のShodex A-80M (8  $\phi \times 500 \text{ mm}$ ) 及び/又はKF-802 (8  $\phi \times 300 \text{ mm}$ ) を接続し、検出器としてRI、溶離液として酢酸エチルを使用した。また流量は1 ml/分とした。

【0042】(2) 導電率の測定

京都電子社の導電率計 (CM-117型) を用いて測定した。

【0043】(3) 膜厚の測定法

ナノメトリック社のナノスベック210を用いて非接触で測定した。屈折率はエリブソメトリー法で求め、その値を用いた。

【0044】(4) スピンコート法

ミカサ社のミカサスピンナー1H-360型で、塗布液を数mlシリコン上に滴下して、500~3500 rpmで15秒間回転塗布して塗布膜を形成した。

【0045】(5) 平坦化度の測定法

段差が約1  $\mu\text{m}$  で、ライン及びスペース巾が0.6~2.0  $\mu\text{m}$  である熱酸化膜のパターン付 4インチシリコンウェハー上にスピンコート法で塗布膜を形成したのち、N<sub>2</sub> 雰囲気での焼成炉で、450℃、30分間の熱処理をした。ウェハーを割断し、パターンの断面を走査電子顕微鏡 (明石製作所製SIGMA-1型) を用い、倍率10,000倍で観察した。そのうち0.8  $\mu\text{m}$  のライン及びスペース部におけるラインの厚みA  $\mu\text{m}$  と、ラインの厚みとその上部に形成された絶縁膜の厚みの合計B  $\mu\text{m}$  及びスペース部の絶縁膜の厚みC  $\mu\text{m}$  を測定し、式〔平坦化度=1-{(B-C)/A}〕により平坦化度を算出した。

【0046】実施例1

ジメチルジメトキシシラン72g、メチルトリメトキシシラン163g、テトラメトキシシラン182gを攪拌機付1lフラスコに入れ、0.1N-HCl水溶液7gと水81gの混合液を25℃で30分間かけてゆっくり滴下した。更に、イオン交換樹脂デュオライトC20とA101Dを混合したカラムに通して、触媒を除去した。得られたシロキサン系プレポリマーの重量平均分子量は2500であった。次いで、イソプロパノール800gを加え、絶縁膜形成用塗布液とした。次いで、0.5N酢酸/エタノール溶液を添加し、導電率を5  $\mu\text{s}/\text{cm}$  に調整した。この塗布液を4インチシリコンベアウェハー上にスピンコート法で条件を変化させて塗布し、450℃、N<sub>2</sub> 雰囲気下での熱処理を行ったところ焼成後の膜厚が1  $\mu\text{m}$  を超えるものでもクラックの発生は認められなかった。次に、パターン付シリコンウェハーを用い、平坦化度を測定したところ、平坦化度は0.90であった。更に、本塗布液を2ヶ月間、冷蔵庫 (約5℃) に保存したものの平坦化度は0.90であり、安定性にも優れていることが判った。

## 【0047】比較例1

実施例1と同様にして、絶縁膜形成用塗布液を作成したが、導電率の調整は行わなかった。塗布液の導電率は $0.01\mu\text{s}/\text{cm}$ であった。平坦化度は当初0.90であったものが、1ヶ月間、冷蔵庫（約 $5^{\circ}\text{C}$ ）に保存後は0.65に低下し、安定性に問題があった。

## 【0048】比較例2

実施例1と同様にして、絶縁膜形成用塗布液を作成し、導電率を $200\mu\text{s}/\text{cm}$ とした。平坦化度は当初0.90であったが、1ヶ月間、冷蔵庫（約 $5^{\circ}\text{C}$ ）に保存後

## 【0049】比較例3

実施例1と同じ組成のモノマーを仕込み、 $0.1\text{N-HCl}$ 水溶液7gと水81gの混合液を $40^{\circ}\text{C}$ で30分間かけてゆっくり滴下し、更に、 $40^{\circ}\text{C}$ で4時間攪拌を続

けた。次いで、イオン交換樹脂デュオライトC20とA101Dを混合したカラムに通して触媒を除去し、重量平均分子量10,000のシロキサン系プレポリマーを得た。更に、イソプロパノール800gを加え、絶縁膜形成用塗布液とし、平坦化度を測定したところ0.60と低い値となった。

## 【0050】実施例2～8及び比較例4～5

有機シリコン化合物、反応条件、有機溶媒、導電率及び導電率調整用の添加物（エタノール溶液として使用）を種々変化させて、絶縁膜形成用塗布液を作成し、プレポリマーの重量平均分子量、塗布液の導電率及びパターン付ウェハーでの平坦化度の測定結果を表3及び表4に示す。

## 【0051】

【表1】

	実 施 例						
	1	2	3	4	5	6	7
有機シリコン化合物							
2官能性							
種類 *1	MDM	MDE	MDM	MDM	MDE	MDM	EDE
量 g	72	89	54	90	89	36	79
モル比	0.20	0.20	0.15	0.25	0.20	0.10	0.15
3官能性							
種類 *2	MTM	MTE	MTM	MTM	MTE	ETE	PTM
量 g	163	187	143	102	187	230	297
モル比	0.40	0.35	0.35	0.25	0.35	0.40	0.50
4官能性							
種類 *3	TM	TE	TE	TE	TM	TM	TM
量 g	182	281	312	312	205	228	160
モル比	0.40	0.45	0.50	0.50	0.45	0.50	0.35
有機溶媒							
種類 *4	IPA	EAC	EAL	EAL	EAC	IPA	BAC
量 g	800	800	800	800	800	800	800
重量平均分子量	2500	2000	1500	3500	3000	4000	2500
添加物							
種類 *5	ACA	AAC	TAC	ANI	ACA	NIA	ACA
導電率 $\mu\text{s}/\text{cm}$	5	3	2	1	10	0.8	20

## 【0052】

※40※【表2】

	実施例	比 較 例				
	8	1	2	3	4	5
有機シリコン化合物						
2官能性						
種類 *1	EDE	MDM	MDM	MDM	MDE	MDE
量 g	158	72	72	72	89	89
モル比	0.30	0.20	0.20	0.20	0.20	0.20
3官能性						
種類 *2	ETE	MTM	MTM	MTM	MTE	MTE

11		(6)				12	
量 g	202	163	163	163	187	187	
モル比	0.35	0.40	0.40	0.40	0.35	0.35	
4官能性							
種類 *3	TE	TM	TM	TM	TE	TE	
量 g	281	182	182	182	281	281	
モル比	0.35	0.40	0.40	0.40	0.45	0.45	
有機溶媒							
種類 *4	EAL	IPA	IPA	IPA	EAC	EAC	
量 g	800	800	800	800	800	800	
重量平均分子量	2000	2500	2500	10000	2000	7000	
添加物							
種類 *5	TCH	-	ACA	ACA	AAC	AAC	
導電率 $\mu\text{S/cm}$	1	0.01	200	5	300	3	

【0053】

\* \* 【表3】

評価	実		施		例	
	1	2	3	4	5	7
平坦化度						
作製直後	0.90	0.90	0.90	0.85	0.85	0.80
1ヶ月後	0.90	0.90	0.90	0.85	0.85	0.80

【0054】

※ ※ 【表4】

評価	実施例	比		較	例	
	8	1	2	3	4	5
平坦化度						
作製直後	0.90	0.90	0.90	0.60	0.90	0.65
1ヶ月後	0.90	0.65	0.70	0.60	0.65	0.65

【0055】

\*1 2官能性有機シリコン化合物の種類

MDM:ジメチルジメトキシラン

MDE:ジエチルジメトキシラン

EDE:ジエチルジエトキシラン

【0056】

\*2 3官能性有機シリコン化合物の種類

MTM:メチルトリメトキシラン

MTE:メチルトリエトキシラン

ETE:エチルトリエトキシラン

PTM:フェニルトリメトキシラン

【0057】

\*3 4官能性有機シリコン化合物の種類

TM:テトラメトキシラン

TE:テトラエトキシラン

【0058】

\*4 有機溶媒の種類

IPA:イソプロパノール

EAC:酢酸エチル

EAL:エタノール

BAC:酢酸ブチル

【0059】

\*5 添加物の種類

AAC:酢酸アンモニウム

40 TAC:酢酸テトラメチルアンモニウム

ANI:硝酸アンモニウム

ACA:酢酸

NIA:硝酸

TCH:炭酸水素テトラメチルアンモニウム

【0060】

【発明の効果】以上説明した通り、本発明により、狭いパターンでも平坦化度が良好で、経時安定性に優れたシリカ系絶縁膜形成用塗布液を提供することができた。

フロントページの続き

(58)調査した分野(Int.Cl.<sup>7</sup>, DB名)

C09D 183/02

C09D 183/04

H01B 3/46